

Patent

Customer No. 31561  
Application No.: 10/708,801  
Docket No. 10731-US-PA

*1/22*

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re application of

Applicant : Chiang et al.  
Application No. : 10/708,801  
Filed : March 26, 2004  
For : ZIRCONIA SOL AND METHOD FOR PREPARING THE  
SAME  
Examiner :  
Art Unit : 1755

---

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS  
Arlington, VA22202

Dear Sirs:

Transmitted herewith is a certified copy of Taiwan Application No.: 92106899,  
filed on: 2003/3/27.

A return prepaid postcard is also included herewith.

Respectfully Submitted,  
JIANQ CHYUN Intellectual Property Office

Dated: July 21, 2004

By: Belinda Lee  
Belinda Lee  
Registration No.: 46,863

**Please send future correspondence to:**

**7F.-1, No. 100, Roosevelt Rd.,  
Sec. 2, Taipei 100, Taiwan, R.O.C.  
Tel: 886-2-2369 2800  
Fax: 886-2-2369 7233 / 886-2-2369 7234  
E-mail: [BELINDA@JCIPGroup.com.tw](mailto:BELINDA@JCIPGroup.com.tw); [USA@JCIPGroup.com.tw](mailto:USA@JCIPGroup.com.tw)**



# 中華民國經濟部智慧財產局

INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE  
MINISTRY OF ECONOMIC AFFAIRS  
REPUBLIC OF CHINA

茲證明所附文件，係本局存檔中原申請案的副本，正確無訛，  
其申請資料如下：

This is to certify that annexed is a true copy from the records of this office of the application as originally filed which is identified hereunder:

申請日：西元 2003 年 03 月 27 日  
Application Date

申請案號：092106899  
Application No.

申請人：國立中央大學  
Applicant(s)

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

局長

Director General

蔡練生

發文日期：西元 2004 年 4 月 27 日  
Issue Date

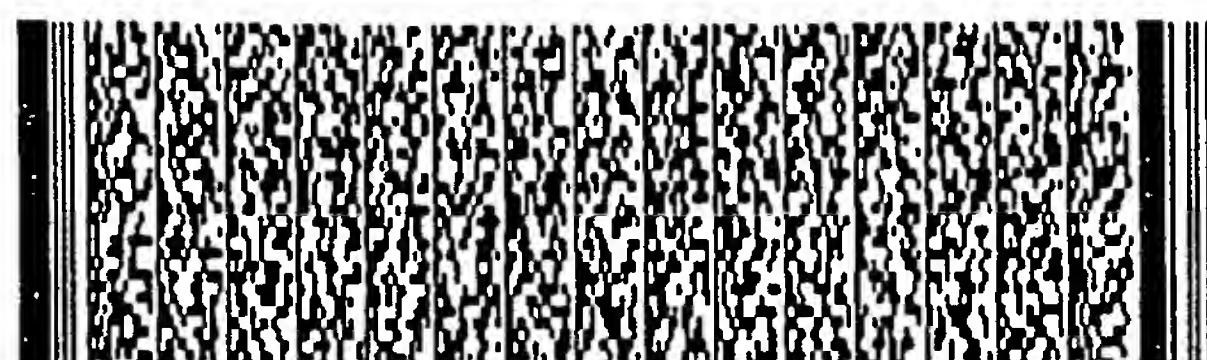
發文字號：09320368590  
Serial No.

|       |       |
|-------|-------|
| 申請日期： | IPC分類 |
| 申請案號： |       |

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

|                    |                       |   |
|--------------------|-----------------------|---|
| 一、<br>發明名稱         | 中 文                   | 氧化鋯溶膠及其製備方法   |
|                    | 英 文                   | Zirconia sol and method of preparing the same   |
| 二、<br>發明人<br>(共3人) | 姓 名<br>(中文)           | 1. 蔣孝澈  |
|                    | 姓 名<br>(英文)           | 1. Anthony Shiaw-Tseh   |
|                    | 國 籍<br>(中英文)          | 1. 中華民國 TW  |
|                    | 住居所<br>(中 文)          | 1. 桃園縣中壢市五權里中大新村125號  |
|                    | 住居所<br>(英 文)          | 1. No. 125, Jungda Shintsuen, Wu-chiuan Li Jungli City, Taoyuan, Taiwan 320, R. O. C. |
| 三、<br>申請人<br>(共1人) | 名稱或<br>姓 名<br>(中文)    | 1. 國立中央大學   |
|                    | 名稱或<br>姓 名<br>(英文)    | 1. National Central University  |
|                    | 國 籍<br>(中英文)          | 1. 中華民國 TW  |
|                    | 住居所<br>(營業所)<br>(中 文) | 1. 桃園縣中壢市五權里中大路300號 (本地址與前向貴局申請者相同)   |
|                    | 住居所<br>(營業所)<br>(英 文) | 1. No. 300, Jungda Rd., Jungli City, Taoyuan, Taiwan 320, R. O. C.                    |
|                    | 代表人<br>(中文)           | 1. 劉全生  |
| 代表人<br>(英文)        | 1. Chuan-Sheng Liu    |   |



10731twf PTD

|       |       |
|-------|-------|
| 申請日期： | IPC分類 |
| 申請案號： |       |

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

|                    |                      |  |
|--------------------|----------------------|--|
| 一、<br>發明名稱         | 中文                   |  |
|                    | 英文                   |  |
| 二、<br>發明人<br>(共3人) | 姓名<br>(中文)           | 2. 楊脩生<br>3. 陳建偉   |
|                    | 姓名<br>(英文)           | 2. Xiu-Sheng Yang<br>3. Chien-Wei Chen   |
|                    | 國籍<br>(中英文)          | 2. 中華民國 TW 3. 中華民國 TW  |
|                    | 住居所<br>(中文)          | 2. 台北市萬大路277巷33弄2號5樓之2<br>3. 苗栗市為公路587號  |
|                    | 住居所<br>(英文)          | 2. 5F1.-2, No. 2, Alley 33, Lane 277, Wanda Rd., Taipei, Taiwan 108,<br>R.O.C.<br>3. No. 587, Weigung Rd., Miaoli City, Miaoli, Taiwan 360, R.O.C. |
| 三、<br>申請人<br>(共1人) | 名稱或<br>姓名<br>(中文)    |  |
|                    | 名稱或<br>姓名<br>(英文)    |  |
|                    | 國籍<br>(中英文)          |  |
|                    | 住居所<br>(營業所)<br>(中文) |  |
|                    | 住居所<br>(營業所)<br>(英文) |  |
|                    | 代表人<br>(中文)          |  |
| 代表人<br>(英文)        |                      |  |



四、中文發明摘要 (發明名稱：氧化鋯溶膠及其製備方法)

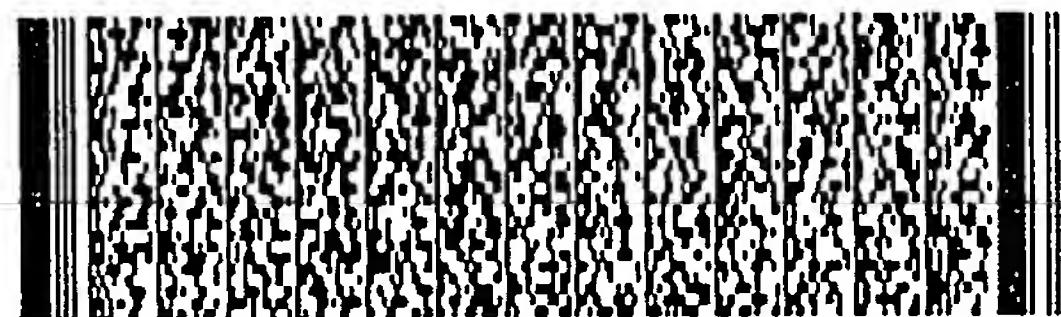
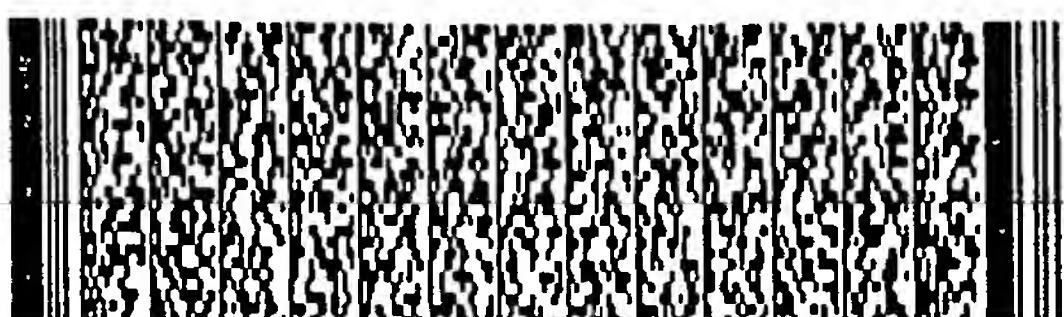
一種氧化鋯溶膠及其製備方法，其中氧化鋯溶膠係由粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成，且氧化鋯結晶一次粒子具有超過90%之正方晶相與立方晶相，而當氧化鋯結晶一次粒子的含量為20wt%時，光學穿透率為70%。

伍、(一)、本案代表圖為：第——1——圖

(二)、本案代表圖之元件代表符號簡單說明：

陸、英文發明摘要 (發明名稱：Zirconia sol and method of preparing the same)

A zirconia sol and method of preparing the same are provided. The zirconia sol comprises crystal zirconia particles having an average primary particles size less than 20 nm. Of the crystalline, about 90% or greater exists in combined cubic and tetragonal crystal lattice structures. The zirconia sol has an optical transmission of about 70% at about 20wt% ZrO<sub>2</sub>.



一、本案已向

國家(地區)申請專利

申請日期

案號

主張專利法第二十四條第一項優先權

二、主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

申請案號：

日期：

三、主張本案係符合專利法第二十條第一項第一款但書或第二款但書規定之期間

日期：

四、有關微生物已寄存於國外：

寄存國家：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

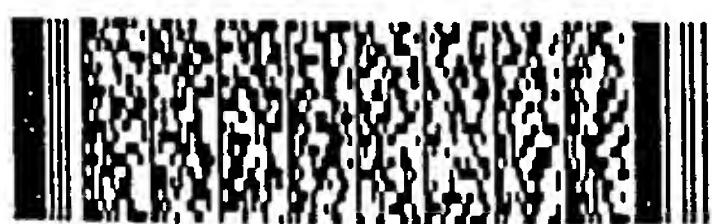
有關微生物已寄存於國內(本局所指定之寄存機構)：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。



## 五、發明說明 (1)

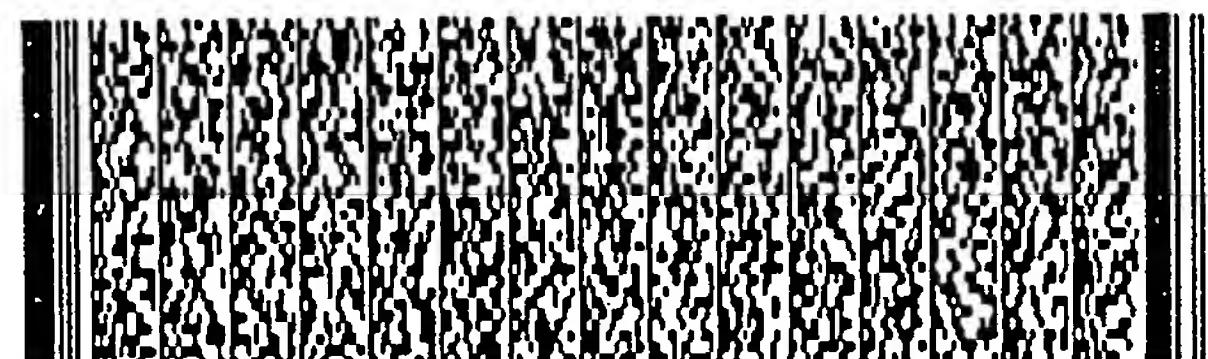
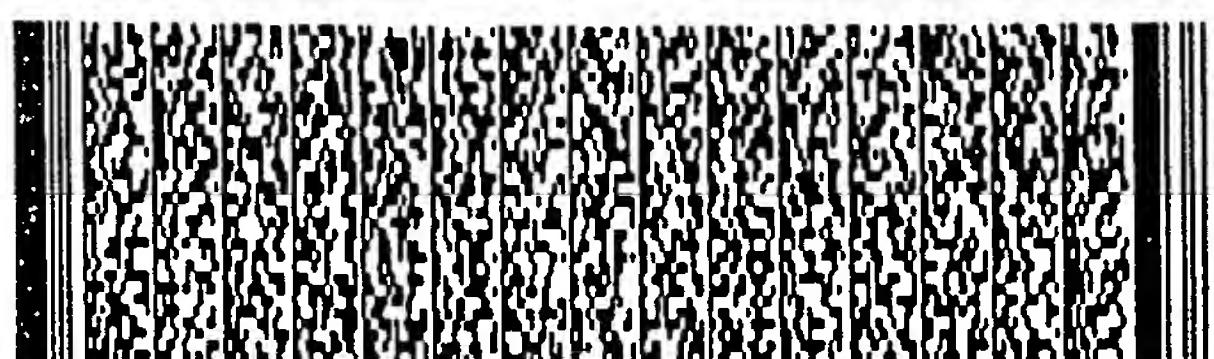
### 發明所屬之技術領域

本發明是有關於一種陶瓷粉末溶膠及其製作方法，且特別是有關於一種氧化鋯(zirconia)溶膠(sol)及其製備方法。

### 先前技術

氧化鋯添加到高分子中時，可提高其透明度或折射率(refractive index)。但是高分子之透明度或折射率提升幅度係取決於氧化鋯添加量及氧化鋯本身之結晶度(degree of crystallinity of the zirconia particles)、結晶晶格結構(crystal lattice structure)、氧化鋯微粒大小(particle size)及聚結程度(degree of primary particle association)。舉例來說，添加結晶氧化鋯之高分子的折射率較高，添加非結晶氧化鋯之高分子的折射率則較低；另外，添加小且不聚集之結晶氧化鋯的高分子透明性較佳，反之，添加結晶變大或聚結成大粒子之氧化鋯則會使高分子的透明性降低。另外，氧化鋯在高分子中可以添加的量也與粒大小有關，氧化鋯之添加量上限為多。所以製作一種不會聚結或僅有弱作用力之結晶性奈米氧化鋯有很重要的應用價值。

然而，即使氧化鋯是透明且形成結晶的氧化鋯溶膠，未必可以添加在高分子中。因為，還要考量此一溶膠是否可以在酸鹼值5~10之間都保持透明的氧化鋯溶膠，才能增加其應用範



## 五、發明說明 (2)

圍。

譬如美國專利案第4,784,794號用氯氧化鋯作鋯原料經過攝氏130度以上溫度處理，可得到一半透明氧化鋯溶膠。但是其酸鹼值低於7。另外，美國專利案第6,376,590號曾經提出用含聚醚或醚基有機酸之鋯鹽溶液為起始物製作出高分散性之奈米氧化鋯結晶。但是其所提出的氧化鋯溶膠之添加量上限低且酸鹼值低於7，而且其製備方法是一種較高溫的製程，所以需要針對製備氧化鋯溶膠作更進一步地改良與研究。

### 發明內容

因此，本發明之目的是提供一種氧化鋯溶膠及其製備方法，以獲致不會聚結或僅有弱作用力之結晶性奈米氧化鋯。

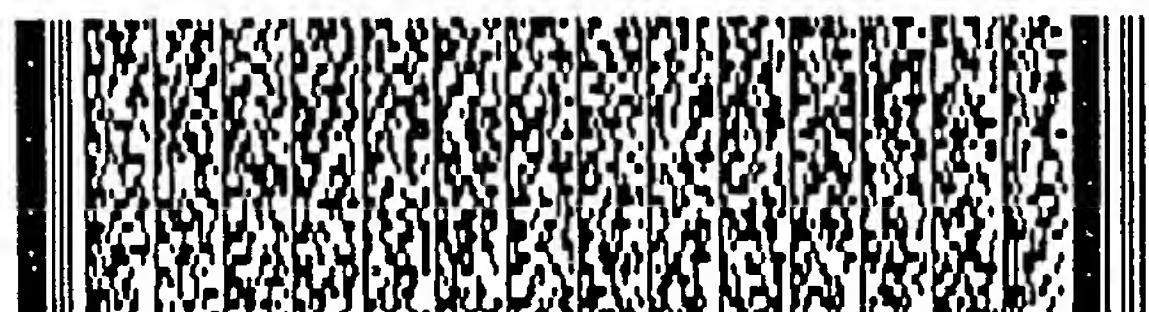
本發明之再一目的是提供一種氧化鋯溶膠及其製備方法，以製得粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成的氧化鋯溶膠。

本發明之另一目的是提供一種氧化鋯溶膠及其製備方法，以提升氧化鋯溶膠之透明度或折射率。

本發明之又一目的是提供一種氧化鋯溶膠及其製備方法，以獲致中性的氧化鋯溶膠。

本發明之又一目的是提供一種氧化鋯溶膠及其製備方法，以於較低的溫度下製備氧化鋯溶膠。

根據上述與其它目的，本發明提出一種氧化鋯溶膠係由粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成，



### 五、發明說明 (3)

且氧化鋯結晶一次粒子具有超過90%之正方晶相與立方晶相，而當氧化鋯結晶一次粒子的含量為20wt%時，光學穿透率超過70%。

本發明再提出一種氧化鋯溶膠之製備方法，包括提供含無機鋯鹽之一第一溶液，其中包括有機酸。然後，將第一溶液加入一緩衝溶液中，以得到一溶膠，其中該緩衝溶液具有有一機胺。之後，加熱溶膠一固定時間，以獲得一產物，再將產物調成一強酸性泥漿。接著，調製強酸性泥漿成為一中性氧化鋯溶膠。

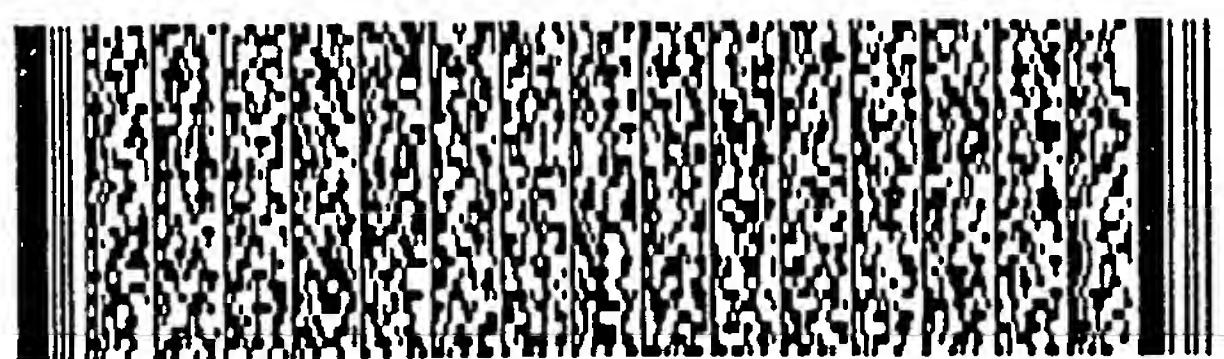
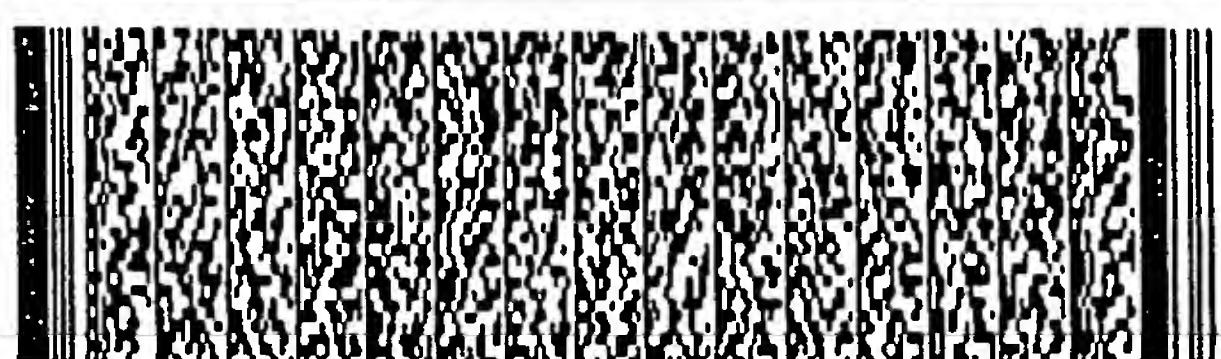
本發明的氧化鋯溶膠因為是由粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成，所以不但提昇氧化鋯溶膠之透明度或折射率，還可經由濃縮還原的過程獲致中性的氧化鋯溶膠。此外，本發明可在較習知方法低的溫度下製備氧化鋯溶膠。

為讓本發明之上述和其他目的、特徵、和優點能更明顯易懂，下文特舉較佳實施例，並配合所附圖式，作詳細說明如下：

#### 實施方式

第1圖係依照本發明之一較佳實施例之氧化鋯溶膠的製造流程步驟圖。

請參照第1圖，首先於步驟100中，提供含無機鋯鹽之一第一溶液，其中第一溶液包括一有機酸，且第一溶液中之鋯鹽濃度每公升約在2~4莫爾之間，以及第一溶液中之鋯鹽例如氯鹽、硝酸鹽、次氯酸鹽或是其他無機酸鹽。此



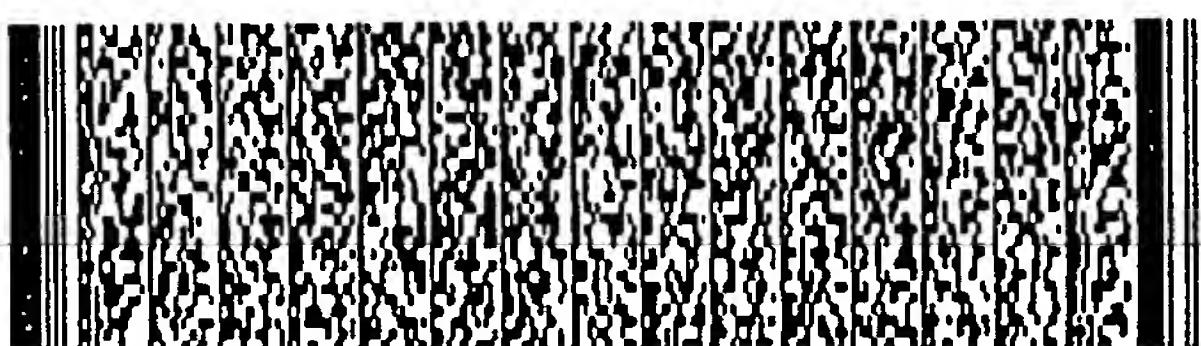
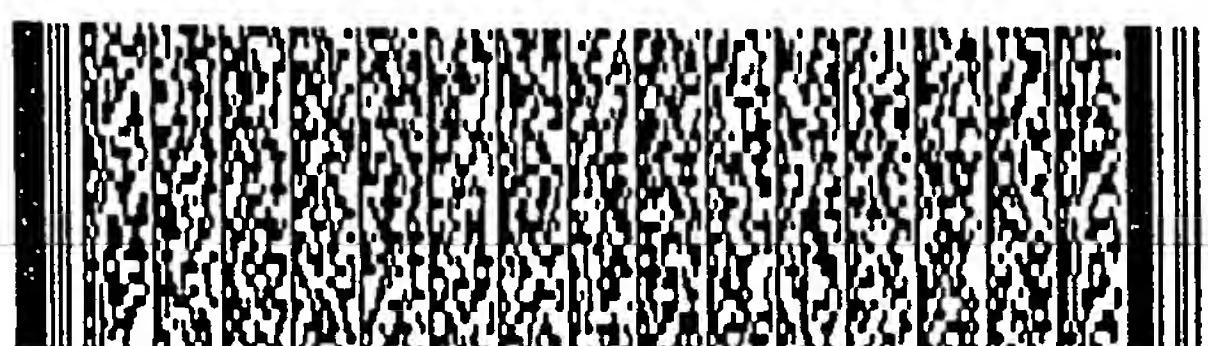
## 五、發明說明 (4)

外，第一溶液中之鋯鹽與有機酸的莫爾比在0.1~0.25之間，其中有機酸譬如是甲酸、乙酸、丙酸、丙烯酸、甲基丙烯酸或苯甲酸等單酸、酒石酸等雙酸、檸檬酸等三酸。

接著，於步驟102中，將第一溶液加入一緩衝溶液中，以得到一溶膠，其中緩衝溶液具有一有機胺，而有機胺例如是三甲胺、三乙胺、三丙胺等三級胺。再者，緩衝溶液之有機胺的添加量為第一溶液中之鋯離子莫爾數的0.1~0.2倍。此外，緩衝溶液中更包括碳酸氫胺。而將第一溶液加入緩衝溶液中之步驟還可包括將一無機強鹼液加入緩衝溶液中。之後，更可包括將緩衝溶液之酸鹼值調到10~12之間、控制緩衝溶液之酸鹼值上下範圍不超過0.5、控制緩衝溶液之溫度上下範圍不超過攝氏10度等步驟，其中控制緩衝溶液之酸鹼值的方法例如控制第一溶液之添加速度。

接著，於步驟104中，加熱溶膠一固定時間，以獲得一產物，而加熱溶膠之步驟包括在攝氏90~120度之間持續加熱，且加熱溶膠之固定時間約在8~24小時之間。另外，加熱溶膠後所獲得的產物係粒徑平均小於20奈米之氧化鋯結晶一次粒子，其中氧化鋯結晶一次粒子的較佳平均粒徑在7~20奈米之間、氧化鋯結晶一次粒子的晶格結構為正方晶相或立方晶相。而於加熱溶膠之步驟後，更可包括凝聚過濾並清洗所得到的產物，以去除大部分的氯離子。

接著，於步驟106中，將產物調成一強酸性泥漿，其中強酸性泥漿之酸鹼值在3以下。再者，將產物調成強酸



## 五、發明說明 (5)

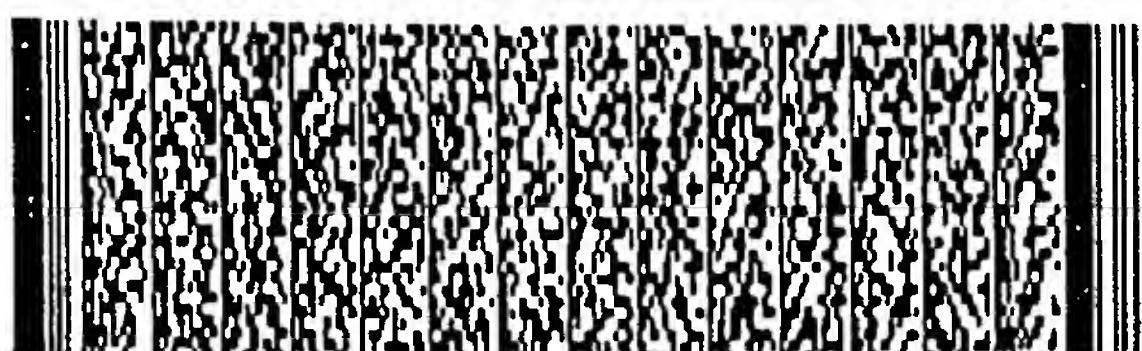
性泥漿之製程譬如是利用有機酸以及一有機分散劑調製，其中有機分散劑的重量則例如是溶膠中之氧化鋯重量的10%~15%。

接著，於步驟108中，調製強酸性泥漿成為一中性氧化鋯溶膠，其中中性氧化鋯溶膠之酸鹼值約在5~10之間。

製成中性氧化鋯溶膠之後，還可包括乾燥此一中性方式氧化鋯溶膠成為一粉體，其中譬如利用真空濃縮或噴霧方式乾燥中性氧化鋯溶膠。而在乾燥中性氧化鋯溶膠成為粉體之後，更可分散粉體於一混合溶劑或是分散粉體於一極性溶劑中，以製成一透明分散溶膠，其中極性溶劑係選自包括水、乙醇、乙二醇。

綜上所述，本發明之特點在於可製備由粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成的氧化鋯溶膠，並能提昇氧化鋯溶膠之透明度或折射率，還可經由濃縮還原知的過程獲致中性的氧化鋯溶膠。此外，本發明可在較習知的方法低的溫度下製備氧化鋯溶膠。

雖然本發明已以較佳實施例揭露如上，然其並非用以限定本發明，任何熟習此技藝者，在不脫離本發明之精神和範圍內，當可作各種之更動與潤飾，因此本發明之保護範圍當視後附之申請專利範圍所界定者為準。



圖式簡單說明

第1圖係依照本發明之一較佳實施例之氧化鋯溶膠的  
製造流程步驟圖。

圖式標示說明

100：提供含無機鋯鹽之一第一溶液，其中第一溶液  
包括一有機酸

102：將第一溶液加入一緩衝溶液中，以得到一溶  
膠，其中緩衝溶液具有一有機胺

104：加熱溶膠一固定時間，以獲得一產物

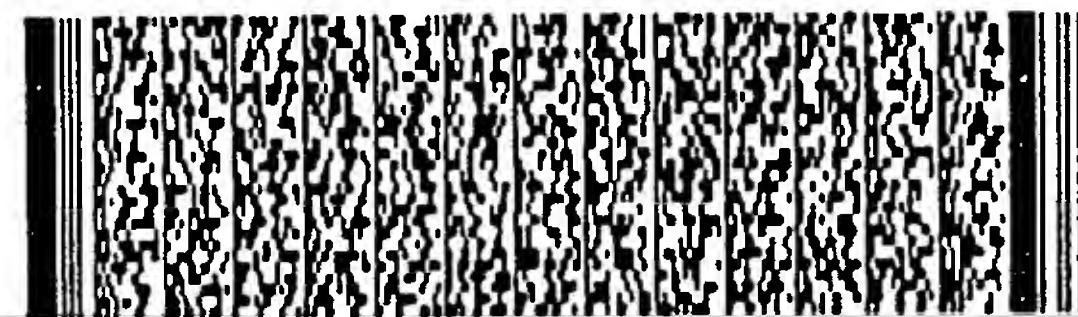
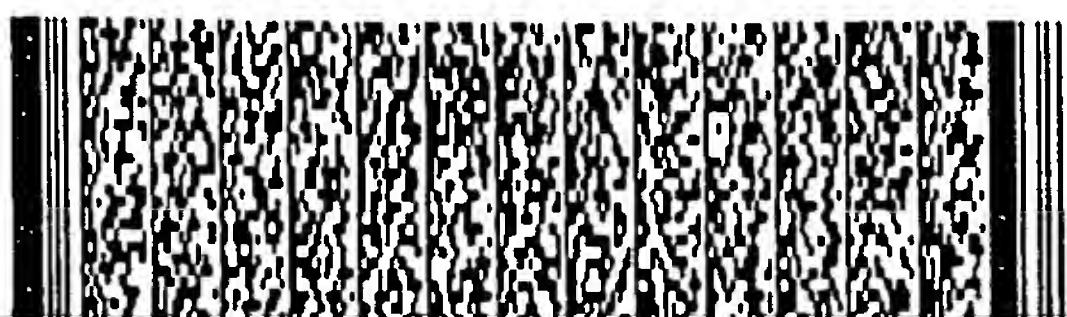
106：將產物調成一強酸性泥漿

108：調製強酸性泥漿成為一中性氧化鋯溶膠



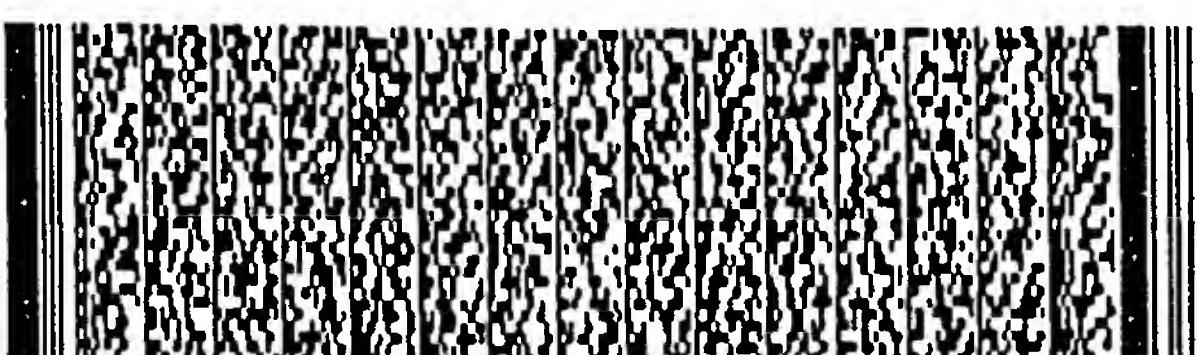
## 六、申請專利範圍

1. 一種氧化鋯溶膠，係由粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子所組成，其中該氧化鋯結晶一次粒子具有超過90%之正方晶相與立方晶相，且該氧化鋯結晶一次粒子的含量為20wt%時，光學穿透率超過70%。
2. 如申請專利範圍第1項所述之氧化鋯溶膠，其中該氧化鋯結晶一次粒子的含量為10wt%時，光學穿透率超過90%。
3. 如申請專利範圍第1項所述之氧化鋯溶膠，其中該氧化鋯結晶一次粒子的平均粒徑在7~20奈米之間。
4. 如申請專利範圍第1項所述之氧化鋯溶膠，其中該氧化鋯結晶一次粒子係均勻分散於酸鹼值在5~10之間的溶膠中。
5. 一種如申請專利範圍第1項氧化鋯溶膠之製備方法，包括：  
    提供含無機鋯鹽之一第一溶液，其中該第一溶液包括一有機酸；  
    將該第一溶液加入一緩衝溶液中，以得到一溶膠，其中該緩衝溶液具有一有機胺；  
    加熱該溶膠一固定時間，以獲得一產物；  
    將該產物調成一強酸性泥漿；以及  
    調製該強酸性泥漿成為一中性氧化鋯溶膠。
6. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中將該第一溶液加入該緩衝溶液中之步驟包括將一無機強鹼液加入該緩衝溶液中。



## 六、申請專利範圍

7. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中將該第一溶液加入該緩衝溶液中之步驟後，更包括將該緩衝溶液之酸鹼值調到10~12之間。
8. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中將該第一溶液加入該緩衝溶液，以得到該溶膠之步驟，更包括控制該緩衝溶液之酸鹼值上下範圍不超過0.5。
9. 如申請專利範圍第8項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中控制該緩衝溶液之酸鹼值之步驟包括控制該第一溶液之添加速度。
10. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中將該第一溶液加入該緩衝溶液，以得到該溶膠之步驟，更包括控制該緩衝溶液之溫度上下範圍不超過攝氏10度。
11. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該第一溶液中之鋯鹽濃度每公升在2~4莫爾之間。
12. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該第一溶液中之鋯鹽係選自於包括氯鹽、硝酸鹽、次氯酸鹽以及其他無機酸鹽。
13. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該第一溶液中之鋯鹽與該有機酸的莫爾比在0.1~0.25之間。
14. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方



## 六、申請專利範圍

法，其中該有機酸係選自於包括甲酸、乙酸、丙酸、丙烯酸、甲基丙烯酸或苯甲酸等單酸、酒石酸等雙酸以及檸檬酸等三酸。

15. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該緩衝溶液更包括碳酸氫胺。

16. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該緩衝溶液之該有機胺係選自包括三甲胺、三乙胺、三丙胺等三級胺。

17. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該緩衝溶液之該有機胺的添加量為該第一溶液中之鋯離子莫爾數的0.1~0.2倍。

18. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中加熱該溶膠之步驟包括在攝氏90~120度之間持續加熱。

19. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中加熱該溶膠之該固定時間在8~24小時之間。

20. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中加熱該溶膠後所獲得的該產物包括粒徑平均小於20奈米之一氧化鋯結晶一次粒子

21. 如申請專利範圍第20項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該氧化鋯結晶一次粒子的平均粒徑在7~20奈米之間。

22. 如申請專利範圍第20項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該氧化鋯結晶一次粒子的晶格結構係選自包括



## 六、申請專利範圍

正方晶相、立方晶相與其混合相其中之一。

23. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中加熱該溶膠之步驟後，更包括凝聚過濾並清洗該產物。

24. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中將該產物調成該強酸性泥漿之步驟包括利用有機酸以及一有機分散劑調製。

25. 如申請專利範圍第24項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該有機分散劑的重量為該溶膠中之氧化鋯重量的10%~15%。

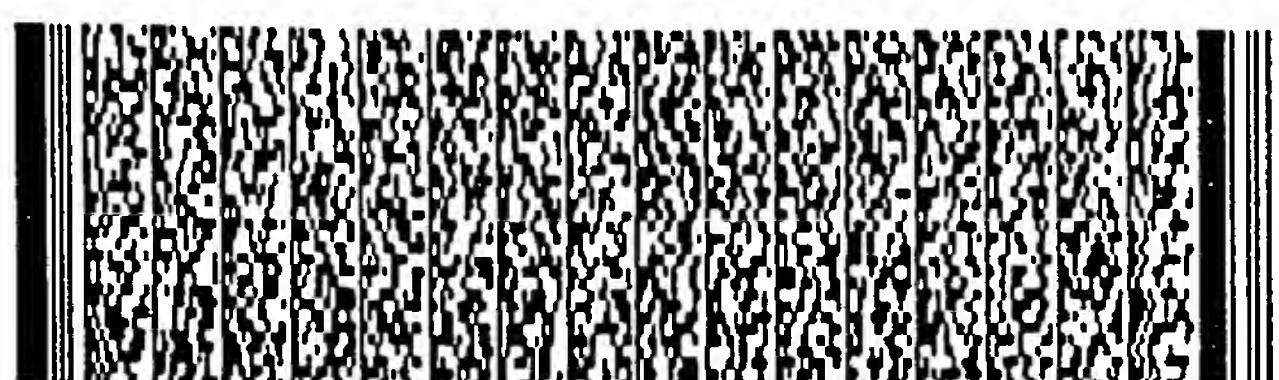
26. 如申請專利範圍第24項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該強酸性泥漿之酸鹼值在3以下。

27. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該中性氧化鋯溶膠之酸鹼值在5~10之間。

28. 如申請專利範圍第5項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中調製該強酸性泥漿成為該中性氧化鋯溶膠之步驟後，更包括乾燥該中性氧化鋯溶膠成為一粉體。

29. 如申請專利範圍第28項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中乾燥該中性氧化鋯溶膠成為該粉體之步驟包括利用真空濃縮與噴霧方式其中之一乾燥該中性氧化鋯溶膠。

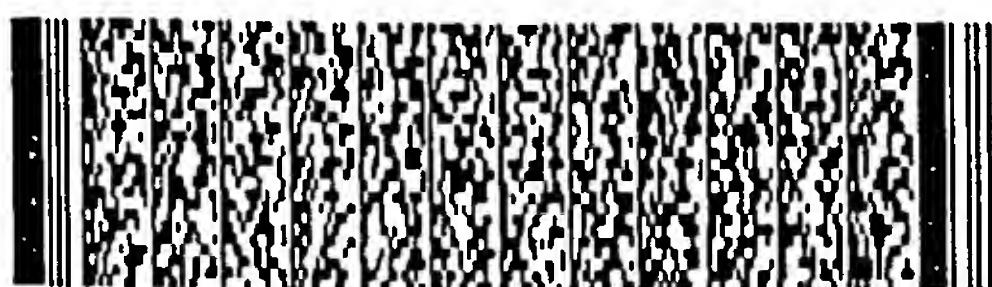
30. 如申請專利範圍第28項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中乾燥該中性氧化鋯溶膠成為該粉體之步驟後，更包括分散該粉體於一混合溶劑中製成一透明分散溶膠。

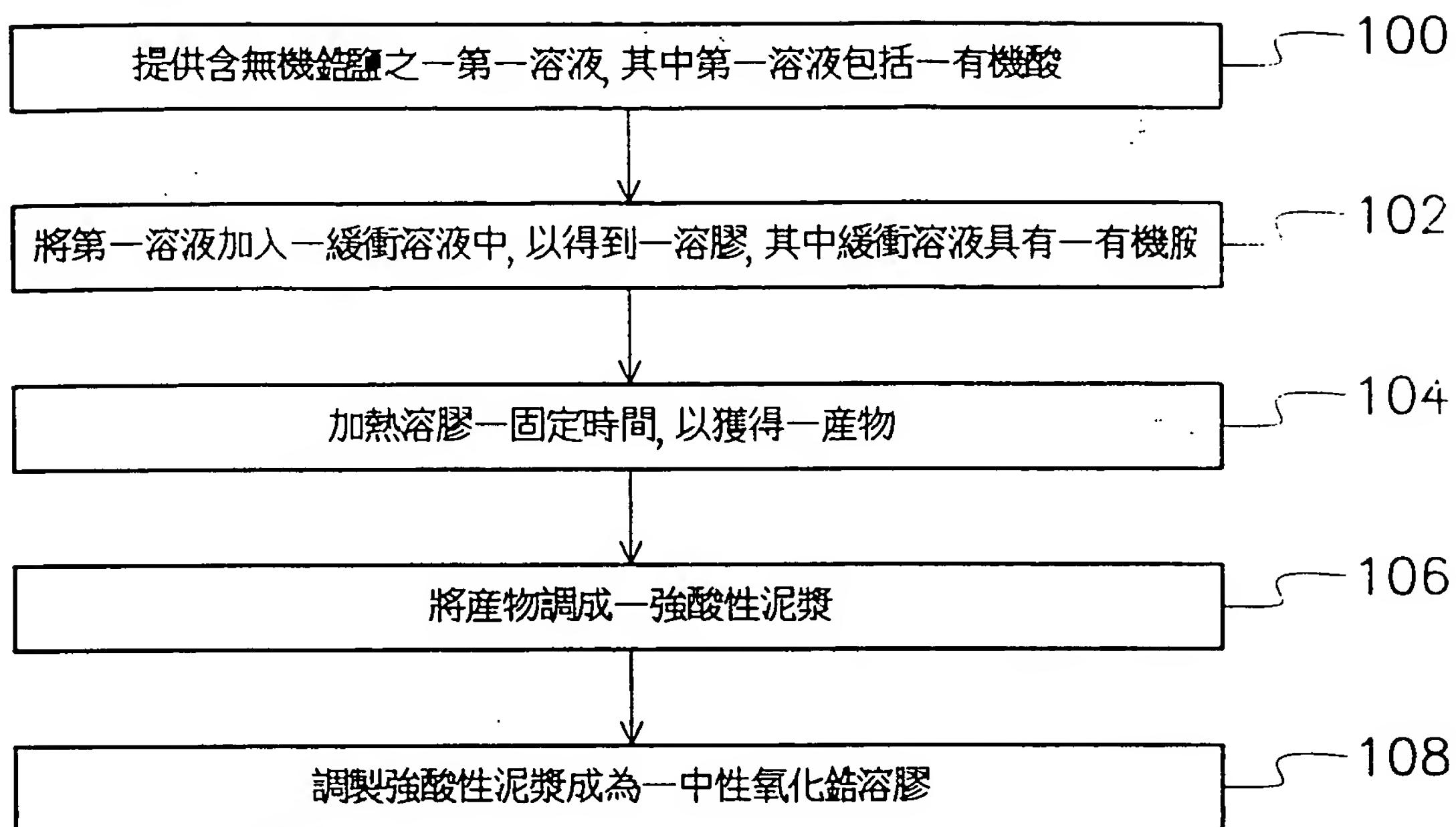


## 六、申請專利範圍

31. 如申請專利範圍第28項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中乾燥該中性氧化鋯溶膠成為該粉體之步驟後，更包括分散該粉體於一極性溶劑中製成一透明分散溶膠。

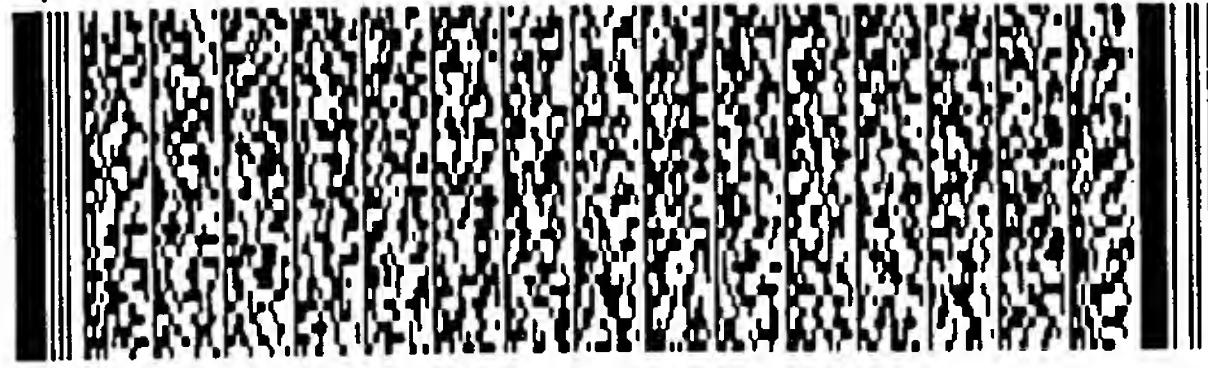
32. 如申請專利範圍第31項所述之氧化鋯溶膠之製備方法，其中該極性溶劑係選自包括水、乙醇、乙二醇。



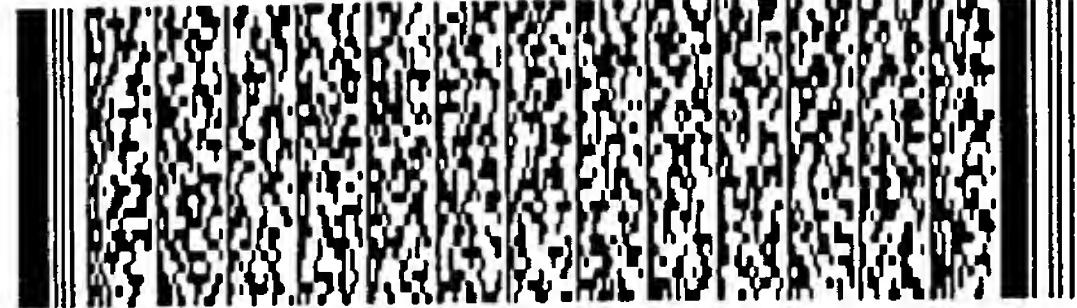


第 1 圖

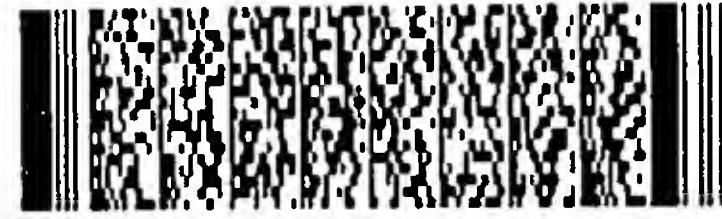
第 1/15 頁



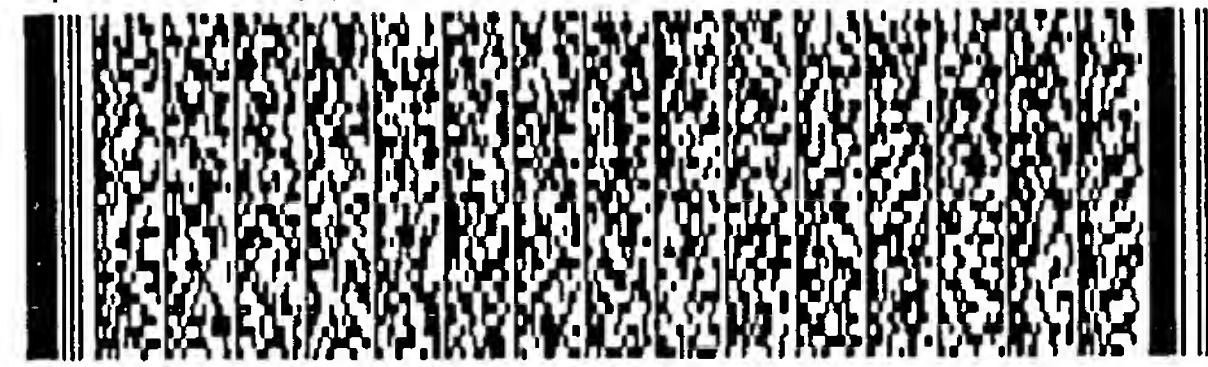
第 3/15 頁



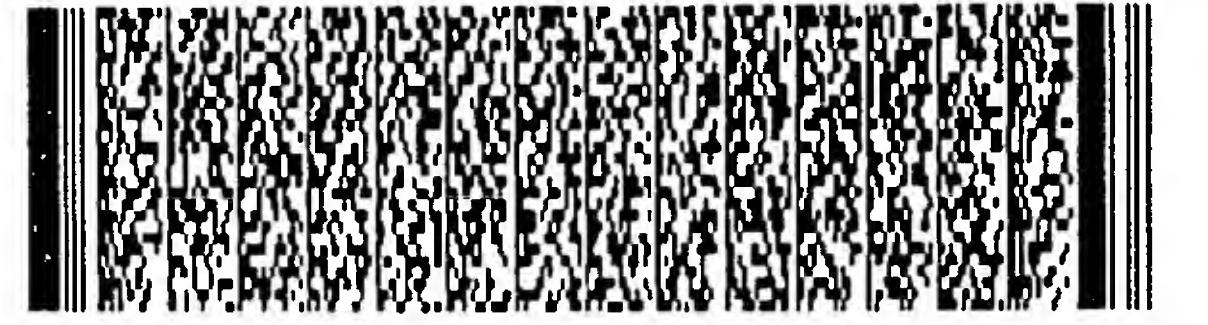
第 4/15 頁



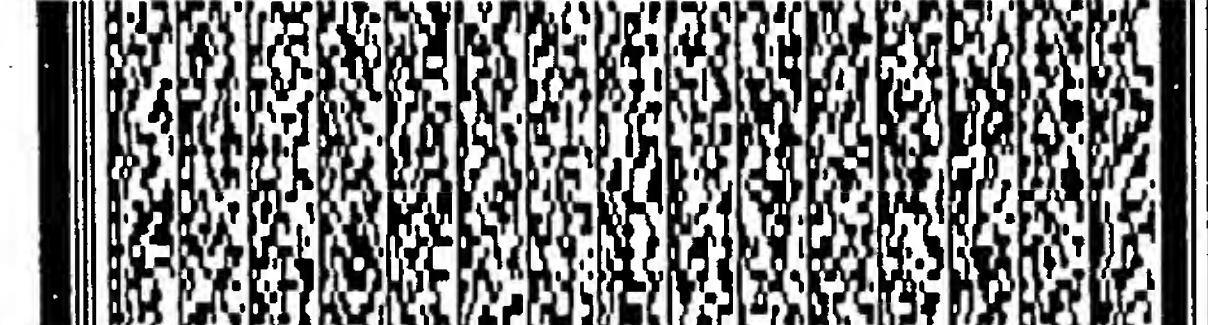
第 5/15 頁



第 6/15 頁



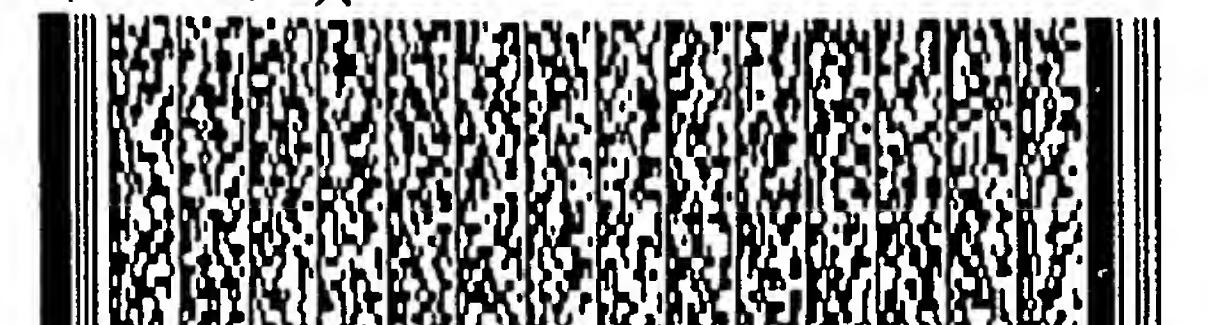
第 7/15 頁



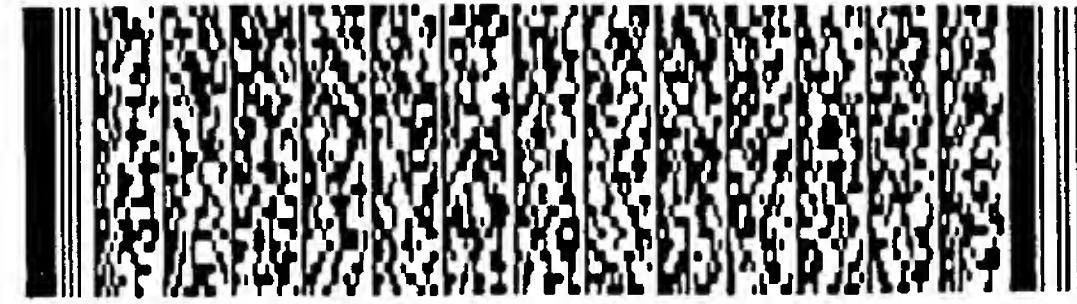
第 8/15 頁



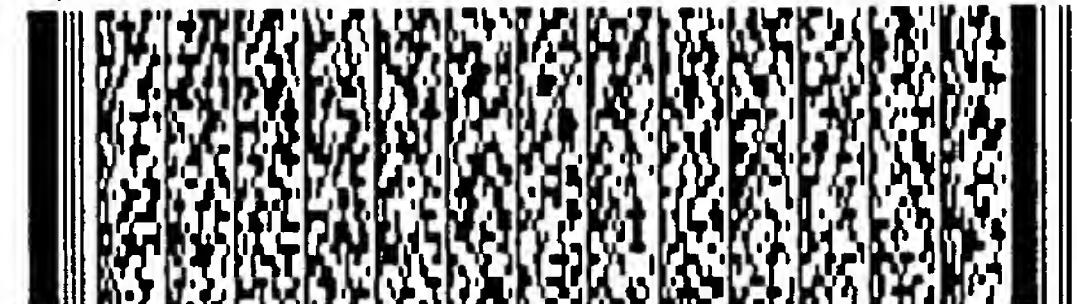
第 9/15 頁



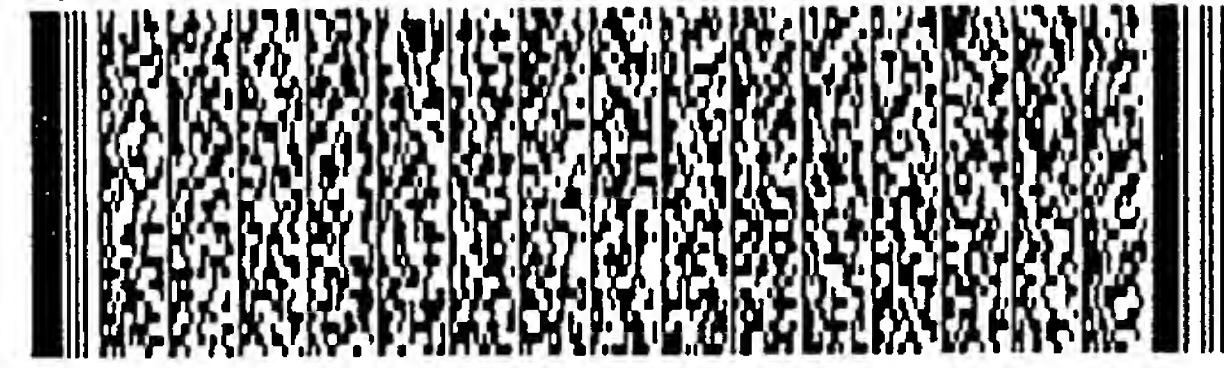
第 2/15 頁



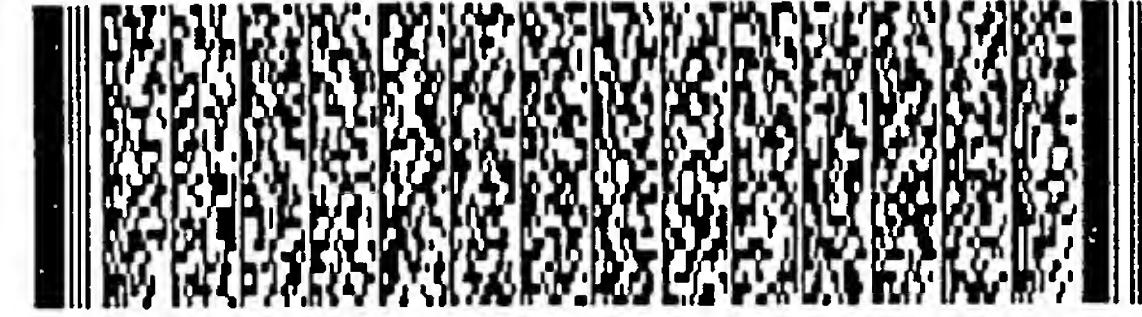
第 3/15 頁



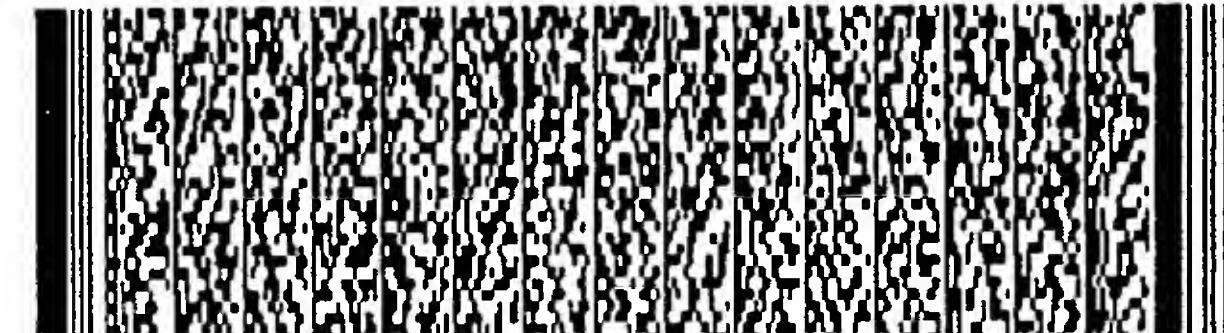
第 5/15 頁



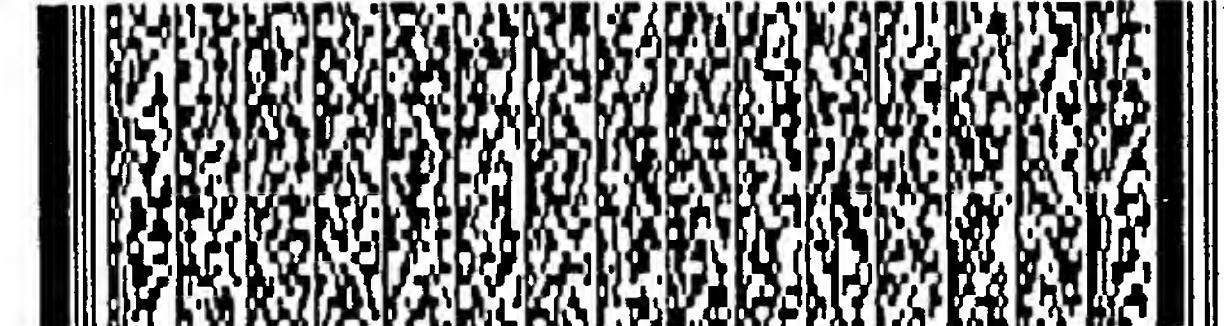
第 6/15 頁



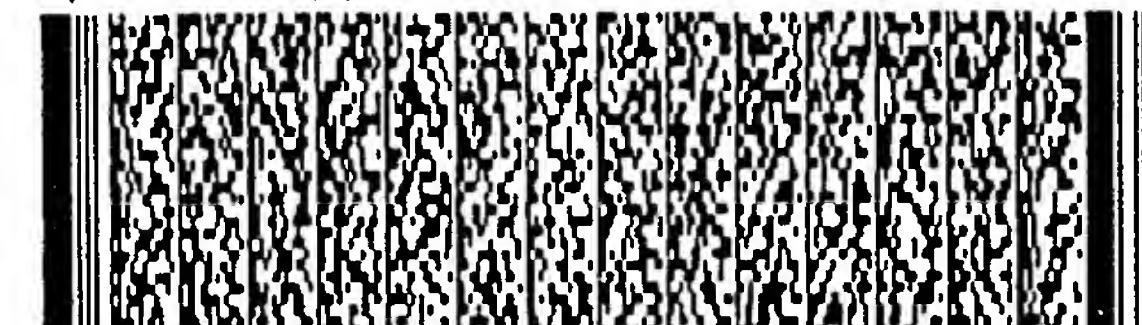
第 7/15 頁



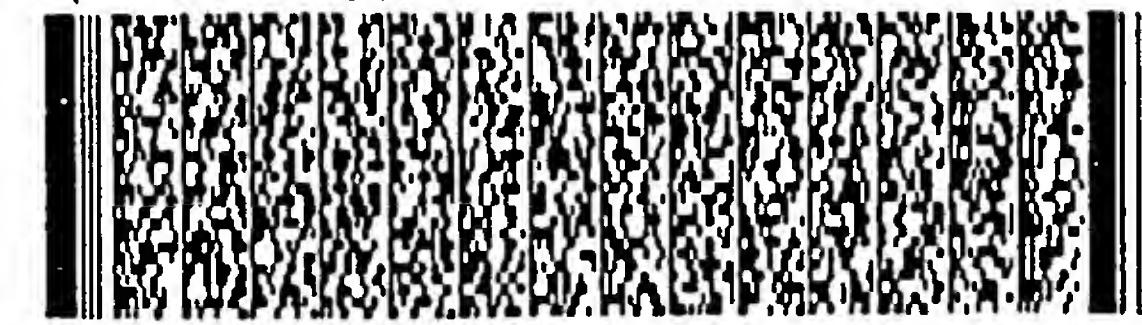
第 8/15 頁



第 9/15 頁

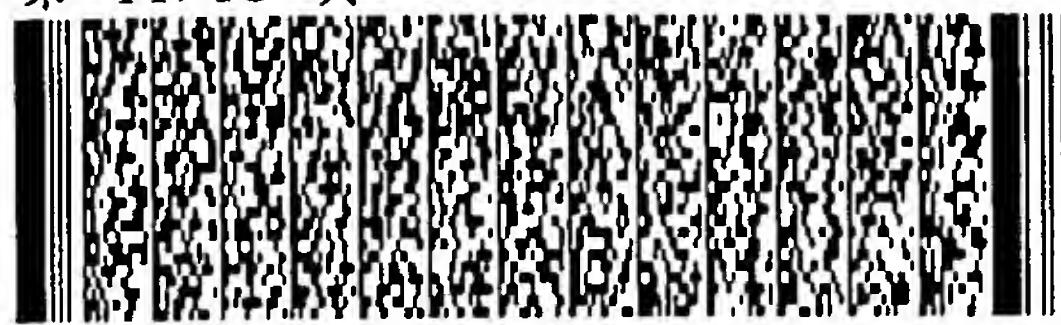


第 10/15 頁

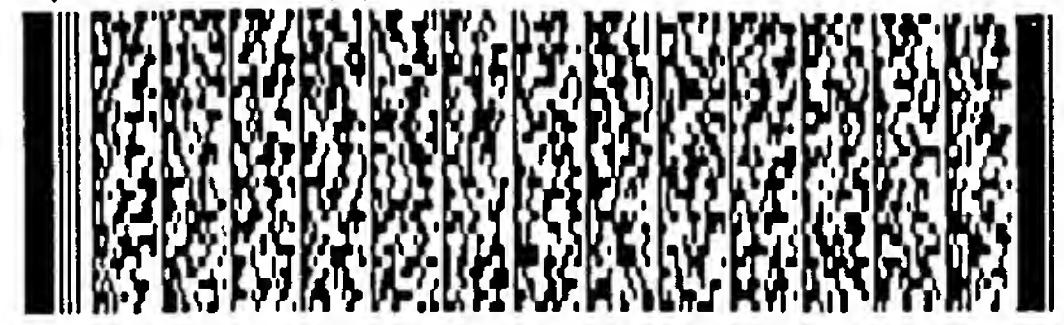


申請案件名稱:氧化鋯溶膠及其製備方法

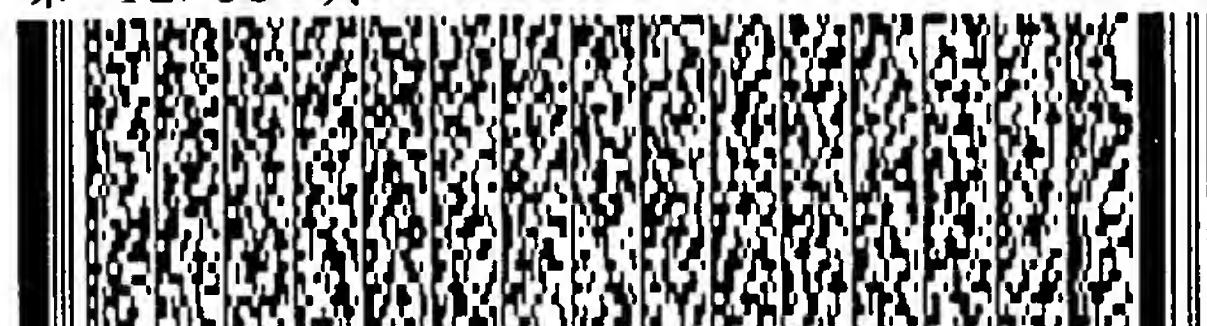
第 11/15 頁



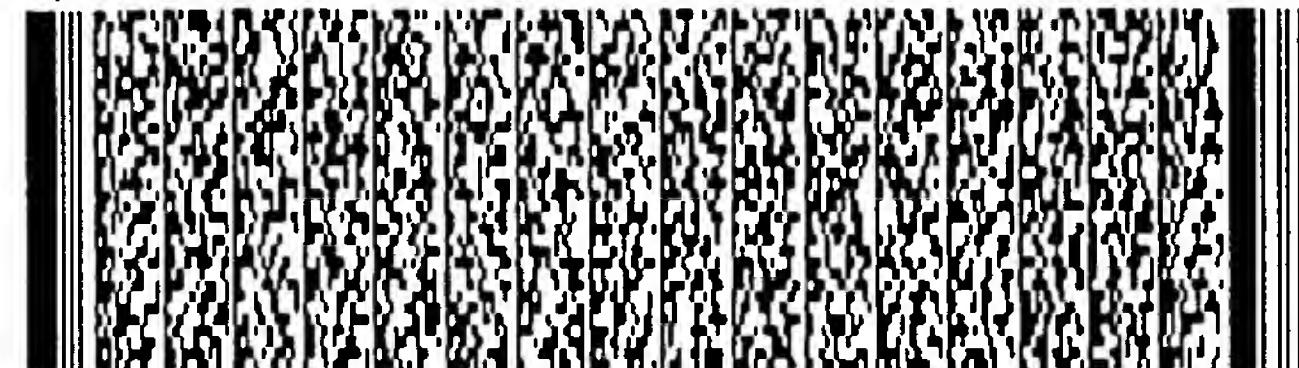
第 11/15 頁



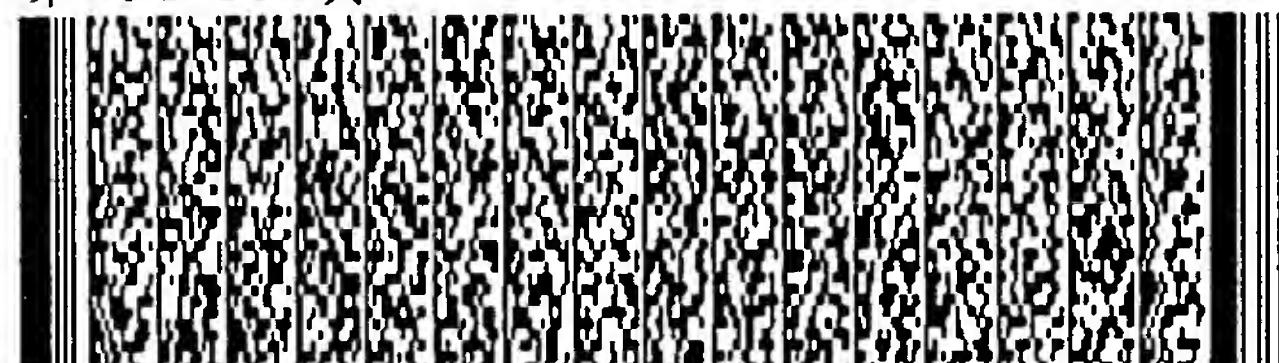
第 12/15 頁



第 13/15 頁



第 14/15 頁



第 15/15 頁

